

Rec'd PCT/PTC 24 FEB 2005

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 3 月 11 日 (11.03.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/020447 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C07F 9/6568, 9/6574, 9/6578, C08L 23/00, 101/00, C08K 5/524, C09K 15/32

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/010680

(22) 国際出願日: 2003 年 8 月 25 日 (25.08.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2002-253210 2002 年 8 月 30 日 (30.08.2002) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学工業株式会社 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒541-8550 大阪府 大阪市 中央区 北浜四丁目 5 番 3 3 号 Osaka (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 肥後 睦子 (HIGO, Mutsuko) [JP/JP]; 〒560-0026 大阪府 豊中市 玉井町 4-2-8-207 Osaka (JP). 田中正章 (TANAKA, Masaaki) [JP/JP]; 〒561-0802 大阪府 豊中市 曽根東町 2-10-3-331 Osaka (JP). 阿波 秀明 (AWA, Hideaki) [JP/JP]; 〒567-0826 大阪府 茨木市 大池 2-29-8 Osaka (JP).

(54) 代理人: 榎本 雅之, 外 (ENOMOTO, Masayuki et al.); 〒541-8550 大阪府 大阪市 中央区 北浜四丁目 5 番 3 3 号 住友化学知の財産センター株式会社内 Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

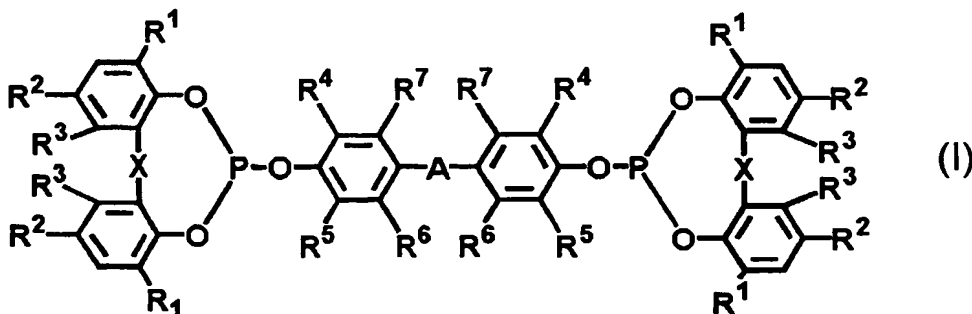
2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類：
一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PHOSPHOROUS ESTER COMPOUND, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND USE THEREOF

(54) 発明の名称: 亜リン酸エステル化合物、その製造法及びその用途



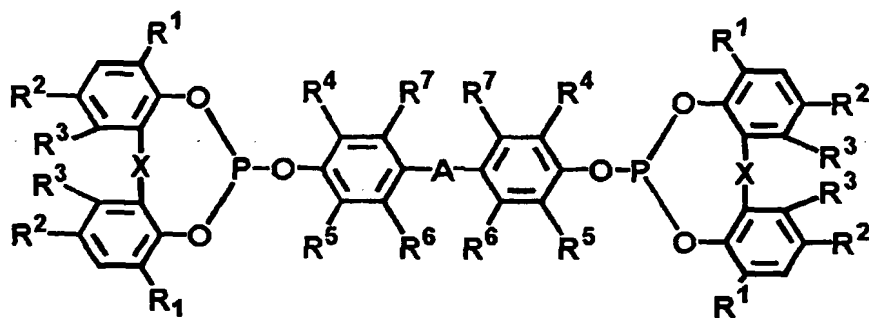
(S7) Abstract: A phosphorous ester compound represented by the formula (I): (I) wherein R¹ and R² each independently represents hydrogen, C₁₋₈ alkyl, C₅₋₈ cycloalkyl, C₆₋₁₂ alkylcycloalkyl, C₇₋₁₂ aralkyl, or phenyl; R³ represents hydrogen or C₁₋₈ alkyl; R⁴, R⁵, R⁶, and R⁷ each independently represents hydrogen, C₁₋₈ alkyl, C₅₋₈ cycloalkyl, C₆₋₁₂ alkylcycloalkyl, C₇₋₁₂ aralkyl, phenyl, C₁₋₈ alkoxy, or halogeno; X represents a single bond, sulfur, or -CHR⁸-; R⁸ represents hydrogen, C₁₋₈ alkyl, or C₅₋₈ cycloalkyl; and A represents a single bond, oxygen, etc.

〔統葉有〕

WO 2004/020447 A1

(57) 要約:

式 (I) :



(式中、R¹及びR²は、それぞれ独立に水素原子、炭素数1～8のアルキル基、炭素数5～8のシクロアルキル基、炭素数6～12のアルキルシクロアルキル基、炭素数7～12のアラルキル基、又はフェニル基を表し、

R³は水素原子又は炭素数1～8のアルキル基を表す。

R⁴、R⁵、R⁶及びR⁷は、それぞれ独立に水素原子、炭素数1～8のアルキル基、炭素数5～8のシクロアルキル基、炭素数6～12のアルキルシクロアルキル基、炭素数7～12のアラルキル基、フェニル基、炭素数1～8のアルコキシ基又はハロゲン原子を表し、

Xは単結合、硫黄原子又は－CHR⁸－基を表し、

R⁸は水素原子、炭素数1～8のアルキル基又は炭素数5～8のシクロアルキル基を表す。 Aは単結合、酸素原子等を表す。)で示される亜リン酸エステル化合物を提供する。

明 細 書

亜リン酸エステル化合物、その製造法及びその用途

5 技術分野

本発明は、新規な亜リン酸エステル化合物、その製造法及びその有機材料用安定剤としての用途に関する。

背景技術

- 10 熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、天然又は合成ゴム、鉱油、潤滑油、接着剤、塗料などの有機材料は、製造時、加工時さらには使用時に、熱や酸素などの作用により劣化し、分子切断や分子架橋といった現象に起因する有機材料の強度物性の低下、流れ性の変化、着色、表面物性の低下等を伴い、商品価値が著しく損なわれることが知られている。このような熱および酸化劣化といった問題
- 15 を解決する目的で、従来からリン系酸化防止剤などを含有せしめることにより、有機材料を安定化することが知られている。

リン系酸化防止剤としては、例えば、置換アリール基と1個の環状亜リン酸エステル基とがカルボニル基又はアルキレン基等の二価基で結合された環状亜リン酸エステル化合物が提案されている（特開平 10-273494 号公報参照）。

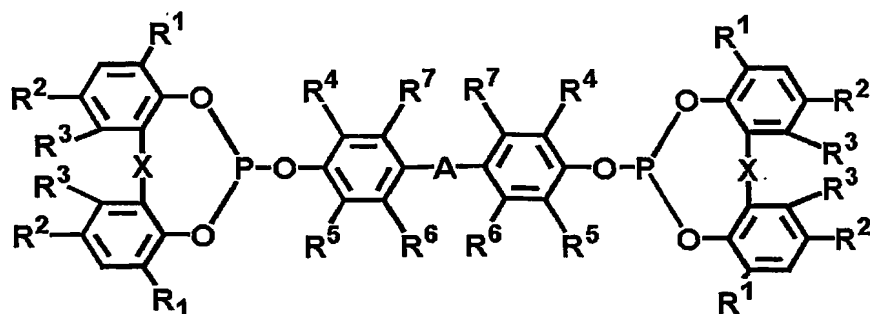
- 20 しかしながら、特開平 10-273494 号公報記載の環状亜リン酸エステル化合物はそれ自身加水分解されやすく、保管時の加水分解等によって有機材料の加工安定性効果にバラツキを生じ、安定した品質の有機材料が得られないという問題があった。更に、上記環状亜リン酸エステルは、それが加水分解されて生成
- 25 する亜リン酸等によって有機材料を加工する際に使用する機器の金属材質を腐食するという別の問題があった。

発明の開示

本発明は、有機材料の安定剤として用いた際に、それ自身加水分解されにくく、安定化効果や耐熱向上性等に優れた安定剤を提供するものである。

すなわち、本発明は、

1. 式 (I):



(式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に水素原子、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、炭素数 6～12 のアルキルシクロアルキル基、炭素数 7～12 のアラルキル基、又はフェニル基を表し、

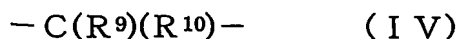
R^3 は水素原子又は炭素数 1～8 のアルキル基を表す。

R^4 、 R^5 、 R^6 及び R^7 は、それぞれ独立に水素原子、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、炭素数 6～12 のアルキルシクロアルキル基、炭素数 7～12 のアラルキル基、フェニル基、炭素数 1～8 のアルコキシ基又はハロゲン原子を表す。

但し、4 個の R^1 は互いに同一または異なり、4 個の R^2 は互いに同一または異なり、4 個の R^3 は互いに同一または異なり、2 個の R^4 は互いに同一または異なり、2 個の R^5 は互いに同一または異なり、2 個の R^6 は互いに同一または異なり、さらに 2 個の R^7 は互いに同一または異なる。

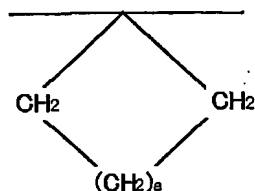
X は単結合、硫黄原子又は $-CHR^8-$ 基を表し、 R^8 は水素原子、炭素数 1～8 のアルキル基又は炭素数 5～8 のシクロアルキル基を表す。

A は単結合、酸素原子、硫黄原子、スルホニル基、スルフィニル基、カルボニル基、フェニレン基、下式 (IV):



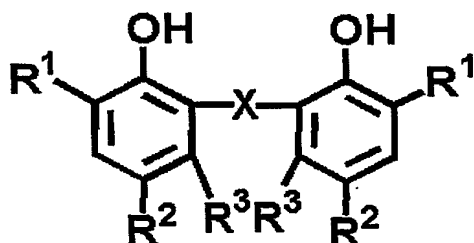
(式中、 R^9 及び R^{10} は、それぞれ独立に水素原子、フェニル基、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、又は炭素数 5～8 のアルキ

ルシクロアルキル基を表す。)で示される基、二価の二環式飽和炭化水素残基、又は下式 (V) :

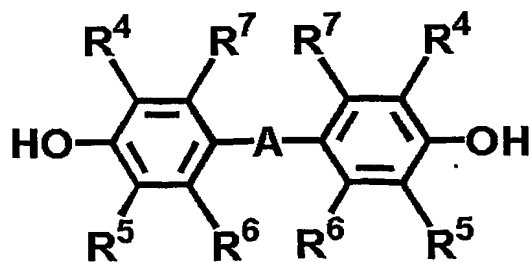


(V)

- (式中、aは2～5の整数を表し、アルキレン基は炭素数1～8のアルキル基で置換されていてもよく、又、1～2個のベンゼン環と縮環していてもよい。)で示される二価の炭化水素環基を表す。))で示される亜リン酸エステル化合物；
2. 式 (I I) :



- (式中、R¹、R²、R³及びXは前記と同じ意味を表す。)
- 10 で示されるジフェノール化合物と、三ハロゲン化リンと、下記式(III) :



(式中、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷及びAは、前記と同じ意味を表す。)で示されるビスフェノール化合物とを反応させることを特徴とする上記記載の亜リン酸エス

テル化合物（I）の製造方法、及び

3. 当該亜リン酸エステル化合物（I）を有効成分として含有することを特徴とする有機材料用安定化剤を提供するものである。

5 発明の実施の形態

本発明の亜リン酸エステル化合物（I）における置換基 R^1 及び R^2 について以下説明する。置換基 R^1 及び R^2 で示される炭素数1～8のアルキル基としては、例えば、メチル、エチル、*n*-プロピル、*iso*-プロピル、*n*-ブチル、*iso*-ブチル、*sec*-ブチル、*t*-ブチル、*t*-ペンチル、*iso*-オクチル、*t*-オクチル、2-エチルヘキシル等が例示される。

上記の炭素数5～8のシクロアルキル基としては、例えば、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル等が例示される。

上記の炭素数6～12のアルキルシクロアルキル基としては、例えば、1-メチルシクロペンチル、1-メチルシクロヘキシル、1-メチル-4-*iso*-プロピルシクロヘキシル等が例示される。

上記の炭素数7～12のアラルキル基としては、例えば、ベンジル、 α -メチルベンジル、 α , α -ジメチルベンジル、1-ナフチルメチル、2-ナフチルメチル、1-ナフチルエチル、2-ナフチルエチル等が例示される。

上記の R^1 としては、*t*-ブチル、*t*-ペンチル、*t*-オクチル等の*t*-アルキル基（3級アルキル基）、又はシクロヘキシル、1-メチルシクロヘキシル等の置換若しくは無置換のシクロヘキシル基が好ましい。上記 R^2 としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、*iso*-プロピル、*n*-ブチル、*iso*-ブチル、*sec*-ブチル、*t*-ブチル、*t*-ペンチル等の炭素数1～5のアルキル基が好ましく、メチル、*t*-ブチル、*t*-ペンチルが特に好ましい。

R^3 で示される炭素数1～8のアルキル基としては、例えば前記の R^1 及び R^2 と同じ基が例示される。 R^3 としては、水素原子又は炭素数1～5のアルキル基が好ましく、水素原子又はメチル基が特に好ましい。

R^4 、 R^5 、 R^6 及び R^7 で示される炭素数1～8のアルキル基、炭素数5～8のシクロアルキル基、炭素数6～12のアルキルシクロアルキル基、炭素数7～

1 2 のアラルキル基としては、例えば前記R¹ 及びR² について例示したものと同様のアルキル基、シクロアルキル基、アルキルシクロアルキル基、アラルキル基が例示される。

5 R⁴、R⁵、R⁶ 及びR⁷ で示される炭素数 1 ～ 8 のアルコキシ基としては、例えばメトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、iso-プロポキシ、n-ブトキシ、iso-ブトキシ、sec-ブトキシ、t-ブトキシ、t-ペンチルオキシ、n-ヘキシルオキシ、n-ヘプチルオキシ、オクチルオキシ基等が例示される。

R⁴、R⁵、R⁶ 及びR⁷ としては、水素原子、又は炭素数 1 ～ 5 のアルキル基が好ましい。

10 X がCHR⁸ で表される基を表すとき、R⁸ で表される炭素数 1 ～ 8 のアルキル基、炭素数 5 ～ 8 のシクロアルキル基としては、それぞれ、前記R¹ 及びR² と同様のアルキル基、シクロアルキル基が例示される。

X としては、単結合、無置換のメチレン基、又はメチレン基が、メチル、エチル、n-プロピル、iso-プロピル、n-ブチル、iso-ブチル若しくは t-ブチル等の炭素数 1 ～ 4 のアルキル基で置換された置換メチレン基が好ましい。

A が式 (IV) で表される基を表すとき、R⁹ 及びR¹⁰ で表される炭素数 1 ～ 8 のアルキル基、炭素原子数 5 ～ 8 のシクロアルキル基の例としては、例えば、それぞれ前記R¹ 及びR² について例示したものと同様のアルキル基、シクロアルキル基、アルキルシクロアルキル基等が例示され、炭素数 5 ～ 8 のアルキルシクロアルキル基としては、1-メチルシクロブチル基、1-メチルシクロペンチル、1-メチルシクロヘキシル、1-メチル-4-iso-プロピルシクロヘキシル等が例示される。

式 (VI) で示される基としては、例えば、メチレン基、前記炭素数 1 ～ 8 のアルキル基がメチレンに置換したメチリデン基、エチリデン基、イソプロピリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-ペンチリデン基、3-ペンチリデン基、ヘキシリデン基、ヘプチリデン基、オクチリデン基、ノニリデン基、ベンジリデン基などが例示される。

A が式 (V) で表される 2 価の炭化水素環基を表すとき、その例としては、例えば、シクロペンチリデン基、シクロヘキシリデン基、メチルシクロヘキシリ

デン基、シクロヘプチリデン基、シクロオクチリデン基、フレオニリデン基、インダニリデン基が例示される。

A が二価の二環式飽和炭化水素残基を表すとき、その例としては、例えば、2 価のボルニレン残基（例えば、2, 3-ボルニレン基）等の炭素数 10 の二環式飽和炭化水素残基が例示される。

A としては、単結合、酸素原子、硫黄原子、スルホニル基、スルフィニル基、カルボニル基、フェニレン基又はイソプロピリデン基が好ましい。

亜リン酸エステル化合物 (I) は、例えば、式 (I I) で示されるジフェノール化合物と、三ハロゲン化リンと、式 (III) で示されるビスフェノール化合物とを反応させることにより、製造することができる。

ここで用いられる三ハロゲン化リンとしては、例えば、三塩化リン、三臭化リン等が例示される。とりわけ三塩化リンが好ましく用いられる。

ジフェノール化合物 (I I) と三ハロゲン化リンとビスフェノール化合物 (I II) とを反応させるにあたっては、例えばアミン化合物、ピリジン化合物、ピロリジン化合物、アミド化合物等の脱ハロゲン化水素剤、アルカリ金属の水酸化物又はアルカリ土類金属の水酸化物を共存させることにより、反応を促進させることもできる。

上記アミン化合物は、一級アミン、二級アミン又は三級アミンのいずれでもよく、例えば、*t*-ブチルアミン、*t*-ペンチルアミン、*t*-ヘキシルアミン、*t*-オクチルアミン、ジ-*t*-ブチルアミン、ジ-*t*-ペンチルアミン、ジ-*t*-ヘキシルアミン、ジ-*t*-オクチルアミン、トリメチルアミン、トリエチルアミン、*N,N*-ジメチルアニリン、*N,N*-ジエチルアニリン等が例示される。アミン化合物としては、トリエチルアミンが好ましい。

上記ピリジン化合物としては、例えば、ピリジン、ピコリン等が例示され、ピリジンが好ましい。上記ピロリジン化合物としては、例えば 1-メチル-2-ピロリジン等が例示される。

上記アミド化合物としては、例えば *N,N*-ジメチルホルムアミド、*N,N*-ジメチルアセトアミド等が例示され、*N,N*-ジメチルホルムアミドが好ましい。

アルカリ金属の水酸化物又はアルカリ土類金属の水酸化物としては、例えば、

水酸化ナトリウム、水酸化カルシウム等が例示され、水酸化ナトリウムが好ましい。

ジフェノール化合物 (I I) と三ハロゲン化リンとビスフェノール化合物(I II)との反応は、好ましくは不活性有機溶媒中で行われる。上記不活性有機溶媒
5 としては、反応を阻害しないものであればよく、例えば、芳香族炭化水素、脂肪族炭化水素、エーテル溶媒、ハロゲン化炭化水素等が例示される。

上記芳香族炭化水素としては、例えばベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等が例示される。上記の脂肪族炭化水素としては、例えば n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタン等が例示される。上記のエーテル溶媒としては、
10 例えばジエチルエーテル、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等が例示される。上記のハロゲン化炭化水素としては、例えばクロロホルム、四塩化炭素、モノクロルベンゼン、ジクロロメタン、1,2-ジクロロエタン、ジクロロベンゼン等が例示される。

これらの有機溶媒の中でも、トルエン、キシレン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、
15 ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、クロロホルム、ジクロロメタン等が好ましく使用される。

反応方法としては、好ましくは、ジフェノール化合物 (II) と三ハロゲン化リンとを反応させ、次いで、得られた中間生成物にビスフェノール化合物(III)を反応させる二段反応法が採用される。

20 二段反応法の場合には、三ハロゲン化リンは、ジフェノール化合物 (II) に対して1～1.1 モル倍程度用いるのが好ましく、1～1.05 モル倍程度用いるのがより好ましい。

アミン、ピリジン化合物、ピロリジン化合物、アミド化合物等の脱ハロゲン化水素剤を用いる場合には、その使用量は、上記の三ハロゲン化リン1モルに対して0.05～2.4 モル程度用いるのが好ましく、2～2.1 モル程度用いるのがより好ましい。

ジフェノール化合物 (II) と三ハロゲン化リンとの反応は、好ましくは0～200℃程度で実施される。この反応により生成した化合物(中間生成物であるハロゲノホスファイト)を単離してから次の反応に供してもよいが、好ましくは

反応混合物のままビスフェノール化合物(III)との反応に供される。

ビスフェノール化合物(III)は、ジフェノール化合物(II)と三ハロゲン化リンとの反応により生成した化合物との反応において、使用されたジフェノール化合物(II) 1 モル当たり、好ましくは0.5~0.6 モル程度用いられる。

- 5 この反応においても、脱ハロゲン化水素剤を用いることができ、その場合の脱ハロゲン化水素剤の使用量は、ビスフェノール化合物(III) 1 モルに対して、0.05~1.2 モル程度が好ましい。このときの脱ハロゲン化水素剤の量は、最初の反応で脱ハロゲン化水素剤を過剰に用いた場合は、残存する脱ハロゲン化水素剤を含めて計算してもよい。

- 10 この際の反応温度は、好ましくは0~200℃程度である。

反応終了後、脱ハロゲン化水素剤を用いた場合には、脱ハロゲン化水素剤由来の生成物(ハロゲン化水素酸塩)を除去し、さらに溶媒を除去した後、例えば晶析やカラムクロマトグラフィーのような適当な後処理を施すことによって、本発明の亜リン酸エステル化合物(I)を得ることができる。

- 15 亜リン酸エステル化合物(I)の原料であるジフェノール化合物(II)は、公知の方法、例えば特開昭 52-122350 号公報、米国特許第 2,538,355 号明細書、特公平 2-47451 号公報に記載された方法等に準拠して、アルキルフェノール化合物を縮合させることにより製造することができる。上記ビスフェノール化合物(II)は市販品を用いてもよい。

- 20 ジフェノール化合物(II)としては、例えば、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-n-プロピル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-iso-プロピル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-n-ブチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-iso-ブチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-t-ペンチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-ノニル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-t-オクチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-t-ペンチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-メチレンビス[4-メチル-6-(α
- 25

ーメチルシクロヘキシル) フェノール)], 2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-ノニ
ルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-t-オクチルフェノール)、2,2
'-メチレンビス(4,6-ジ-t-ペンチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[4-ノニル
-6-(α -メチルベンジル) フェノール]、2,2'-メチレンビス[4-ノニル-6- (α
5 , α -ジメチルベンジル) フェノール]、2,2'-エチリデンビス(4-メチル-6-ブ
チルフェノール)、

2,2'-エチリデンビス(4-エチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビ
ス(4-n-プロピル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4-iso-プロ
ピル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4-n-ブチル-6-t-ブチルフ
10 エノール)、2,2'-エチリデンビス(4-iso-ブチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2
'-エチリデンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4-t-ペ
ンチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4-ノニル-6-t-ブチルフ
エノール)、2,2'-エチリデンビス(4-t-オクチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2
'-エチリデンビス(4-メチル-6-t-ペンチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(
15 4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-エチリデンビス[4-メチル-6-(
 α -メチルシクロヘキシル) フェノール]、2,2'-エチリデンビス(4-メチル-6-
ノニルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4-メチル-6-t-オクチルフェノール
)、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-t-ペンチルフェノール)、2,2'-エチリデンビ
ス[4-ノニル-6-(α -メチルベンジル) フェノール]、2,2'-エチリデンビス[4-
20 ノニル-6-(α , α -ジメチルベンジル) フェノール]、2,2'-プロピリデンビス(
4-メチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4-エチル-6-t-ブ
チルフェノール)、

2,2'-プロピリデンビス(4-n-プロピル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピ
リデンビス(4-iso-プロピル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(
25 4-n-ブチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4-iso-ブチル-6-
t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェノール)
、2,2'-プロピリデンビス(4-t-ペンチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピ
リデンビス(4-ノニル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4-t-オ
クチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4-メチル-6-t-ペンチ

ルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス[4-メチル-6-(α -メチルシクロヘキシル)フェノール]、2,2'-プロピリデンビス(4-メチル-6-ノニルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4-メチル-6-*t*-オクチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス(4,6-ジ-*t*-ペンチルフェノール)、2,2'-プロピリデンビス[4-ノニル-6-(α -メチルペンジル)フェノール]、2,2'-プロピリデンビス[4-ノニル-6-(α , α -ジメチルペンジル)フェノール]、2,2'-ブチリデンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-ブチリデンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-ブチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-ブチリデンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、

2,2'-ブチリデンビス[4-メチル-6-(α -メチルシクロヘキシル)フェノール]、2,2'-ブチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ペンチルフェノール)、2,2'-*iso*-ブチリデンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-*iso*-ブチリデンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-*iso*-ブチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-*iso*-ブチリデンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-*iso*-ブチリデンビス[4-メチル-6-(α -メチルシクロヘキシル)フェノール]、2,2'-*iso*-ブチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ペンチルフェノール)、2,2'-ペンチリデンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-ペンチリデンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-ペンチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-ペンチリデンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-ペンチリデンビス[4-メチル-6-(α -メチルシクロヘキシル)フェノール]、2,2'-ペンチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ペンチルフェノール)、ビフェニル-2,2'-ジオール、3,3',5,5'-テトラ-*t*-ブチルビフェニル-2,2'-ジオール、1,1'-ビナフチル-2,2'-ジオール等が例示される。

上記のビフェノール化合物(III)は、公知の方法により製造することができる。ビフェノール化合物(III)は、市販品を用いてもよい。

ビフェノール化合物(III)としては、例えば 4,4'-ビスフェノール、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、ビス(4-ヒドロキシジフェニル)スルフィド、4,4'-ジヒドロキシ-3,3'-ジクロロジフェニルエーテル、4,4'-ジヒドロキシ-2,5

- ジエトキシジフェニルエーテル、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン、4,4'-ジヒドロキシベンゾフェノン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジエチルフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-(3,5-フェニル)フェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジブromoフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)エタン、3,3-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン等が例示される。

10 かくして得られる本発明の亜リン酸エステル化合物 (I) の例としては、例えば、式 (I) において、R³ から R⁷ が水素原子を表し、R¹、R²、X および A がそれぞれ下記の基を表す化合物が例示される。

表 I

	No.	R ¹	R ²	X	A
15	1	t-Bu	t-Bu	単結合	O
	2	t-Bu	t-Bu	単結合	S
	3	t-Bu	t-Bu	単結合	S(O) ₂
	4	t-Bu	t-Bu	単結合	単結合
	5	t-Bu	t-Bu	単結合	C(CH ₃) ₂
20	6	t-Bu	Me	CH ₂	O
	7	t-Bu	Me	CH ₂	S
	8	t-Bu	Me	CH ₂	S(O) ₂
	9	t-Bu	Me	CH ₂	単結合
	10	t-Bu	Me	CH ₂	C(CH ₃) ₂
25	11	t-Bu	t-Bu	CH ₂	O
	12	t-Bu	t-Bu	CH ₂	S
	13	t-Bu	t-Bu	CH ₂	S(O) ₂
	14	t-Bu	t-Bu	CH ₂	単結合
	15	t-Bu	t-Bu	CH ₂	C(CH ₃) ₂

No.	R ¹	R ²	X	A
16	t-Am	t-Am	CH(CH ₃)	O
17	t-Am	t-Am	CH(CH ₃)	S
18	t-Am	t-Am	CH(CH ₃)	S(O) ₂
5 19	t-Am	t-Am	CH(CH ₃)	単結合
20	t-Am	t-Am	CH(CH ₃)	C(CH ₃) ₂
21	t-Bu	Et	CH ₂	O
22	t-Bu	Et	CH ₂	S
23	t-Bu	Et	CH ₂	S(O) ₂
10 24	t-Bu	Et	CH ₂	単結合
25	t-Bu	Et	CH ₂	C(CH ₃) ₂

表 I において、Me はメチル基を、Et はエチル基を、t-Bu はターシャリーブチル基を、t-Am は、ターシャリーアミル基を、それぞれ表す。

本発明の亜リン酸エステル化合物 (I) は、アミン化合物、酸と結合する金属塩、(後述するハイドロタルサイト等の複塩化合物) を含有させることにより、耐加水分解性を向上せしめることができる。

上記アミン化合物の代表例としては、例えば、トリエタノールアミン、トリプロパノールアミン、トリ-iso-プロパノールアミン等のトリアルカノールアミン、

ジエタノールアミン、ジプロパノールアミン、ジ-iso-プロパノールアミン、テトラエタノールエチレンジアミン、テトラ-iso-プロパノールエチレンジアミン等のジアルカノールアミン、

ジブチルエタノールアミン、ジブチル-iso-プロパノールアミン等のモノアルカノールアミン、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリアジン等の芳香族アミン、

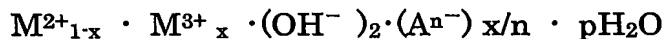
ジブチルアミン、ピペリジン、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、4-ヒドロキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン等のアルキルアミン、

ヘキサメチレンテトラミン、トリエチレンジアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン等のポリアルキレンポリアミン、又は後述するヒンダードアミン系光安定剤等が例示される。

さらに、特開昭 61-63686 号公報に記載の長鎖脂肪族アミン、特開平 6-329830 号公報に記載の立体障害アミン基を含む化合物、特開平 7-90270 号公報に記載のヒンダードピペリジニル系光安定剤、特開平 7-278164 号公報に記載の有機アミン等も使用し得る。

- 5 前記のアミン化合物の使用量は、亜リン酸エステル化合物（I）の 100 重量部当たり、好ましくは 1～25 重量部程度である。

酸と結合する金属塩としては、例えば次式で示される複塩化合物が例示される。

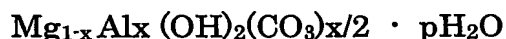


- 10 （式中、 M^{2+} は Mg, Ca, Sr, Ba, Zn, Pb, Sn 又は Ni を表し、 M^{3+} は Al, B 又は Bi を表し、 n は 1～4 の数値を表し、 x は 0～0.5 の数値を表し、 p は 0～2 の数値を表す。 A^{n-} は価数 n のアニオンを表す。）

ここで、 A^{n-} で示される価数 n のアニオンとしては、例えば OH^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 ClO_4^- 、 HCO_3^- 、 $C_6H_5COO^-$ 、 CO_3^{2-} 、 SO_3^{2-} 、 $^-OOC-COO^-$ 、

- 15 $(CHOHCOO)_2^{2-}$ 、 $C_2H_4(COO)_2^{2-}$ 、 $(CH_2COO)_2^{2-}$ 、 $CH_3CHOHCOO^-$ 、 SiO_3^{2-} 、 SiO_4^{4-} 、 $Fe(CN)_6^{4-}$ 、 BO_3^- 、 PO_3^{3-} 、 HPO_4^{2-} 等が例示される。

上記式中で、特に好ましいものとしては、例えば下式で表されるハイドロタルサイトが例示される。



- 20 （式中、 x 、 p は前記と同じ意味を表す）

ハイドロタルサイトは、天然物であっても、合成品であっても良く、またその結晶構造、結晶粒子径などを問わず使用することができる。

さらに、酸と結合する金属塩としては、特開平 6-329830 号公報に記載の超微細酸化亜鉛、特開平 7-278164 号公報に記載の無機化合物等も使用することができ

- 25 きる。

酸と結合する金属塩の亜リン酸エステル化合物（I）に対する使用比率は、通常 0.01～25 重量％程度である。

本発明の亜リン酸エステル化合物（I）は、有機材料の熱劣化および酸化劣化等に対して安定化するのに有効である。本発明により安定化することができ

る有機材料としては、例えば次のようなものが例示され、それぞれ単独のもの、あるいは二種以上の混合物を安定化することができるが、これらの有機材料に限定されるものではない。

- (1) ポリエチレン、例えば高密度ポリエチレン (HD-PE)、低密度ポリエチレン (LD-PE)、直鎖状低密度ポリエチレン (LLDPE)、
- (2) ポリプロピレン、
- (3) メチルペンテンポリマー、
- (4) EEA (エチレン/アクリル酸エチル共重合) 樹脂、
- (5) エチレン/酢酸ビニル共重合樹脂、
- (6) ポリスチレン類、例えばポリスチレン、ポリ (p-メチルスチレン)、ポリ (α -メチルスチレン)、
- (7) AS (アクリロニトリル/スチレン共重合) 樹脂、
- (8) ABS (アクリロニトリル/ブタジエン/スチレン共重合) 樹脂、
- (9) AAS (特殊アクリルゴム/アクリロニトリル/スチレン共重合) 樹脂、
- (10) ACS (アクリロニトリル/塩素化ポリエチレン/スチレン共重合) 樹脂、
- (11) 塩素化ポリエチレン、ポリクロロプレン、塩素化ゴム、
- (12) ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、
- (13) メタクリル樹脂、
- (14) エチレン/ビニルアルコール共重合樹脂、
- (15) フッ素樹脂、
- (16) ポリアセタール、
- (17) グラフト化ポリフェニレンエーテル樹脂およびポリフェニレンサルファイド樹脂、
- (18) ポリウレタン、
- (19) ポリアミド、
- (20) ポリエステル樹脂、例えばポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、
- (21) ポリカーボネート、
- (22) ポリアクリレート、

- (23) ポリスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、
- (24) 芳香族ポリエステル樹脂等の熱可塑性樹脂、
- (25) エポキシ樹脂、
- (26) ジアリルフタレートプレポリマー、
- 5 (27) シリコーン樹脂、
- (28) 不飽和ポリエステル樹脂、
- (29) アクリル変性ベンゾグアナミン樹脂、
- (30) ベンゾグアナミン／メラミン樹脂、
- (31) ユリア樹脂等の熱硬化性樹脂、
- 10 (32) ポリブタジエン、
- (33) 1, 2-ポリブタジエン、
- (34) ポリイソプレン、
- (35) スチレン／ブタジエン共重合体、
- (36) ブタジエン／アクリロニトリル共重合体、
- 15 (37) エチレン／プロピレン共重合体、
- (38) シリコーンゴム、
- (39) エピクロルヒドリンゴム、
- (40) アクリルゴム、
- (41) 天然ゴム、
- 20 (42) 塩素ゴム系塗料、
- (43) ポリエステル樹脂塗料、
- (44) ウレタン樹脂塗料、
- (45) エポキシ樹脂塗料、
- (46) アクリル樹脂塗料、
- 25 (47) ビニル樹脂塗料、
- (48) アミノアルキド樹脂塗料、
- (49) アルキド樹脂塗料、
- (50) ニトロセルロース樹脂塗料、
- (51) 油性塗料、

(52) ワックス、

(53) 潤滑油など。

なかでも、熱可塑性樹脂、とりわけポリエチレン、例えばHD-PE、LD-PE、LLDPEやポリプロピレン等のポリオレフィン、ポリアミド、ポリ
5 エチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリカーボネート、
液晶ポリエステル、ポリエーテルスルホン、ポリスルホン、ポリエーテルケト
ン等のエンジニアリングプラスチック等に好ましく用いられる。

これらのポリオレフィンは、特に限定はなく、例えば、ラジカル重合によっ
て得られたものでも良く、周期表 4、5、6、8、9もしくは10族の金属を含
10 有する触媒を用いる重合により製造されたものでもよい。かかる金属を含有す
る触媒としては、1つ以上の配位子、例えば π あるいは σ 結合によって配位する
酸化物、ハロゲン化合物、アルコレート、エステル、アリール等を有する金属
錯体であってもよく、これらの錯体はそのままであっても塩化マグネシウム、
塩化チタン、アルミナ、酸化ケイ素等の基材に担持されていてもよい。

15 ポリオレフィンとしては、例えばチーグラ-ナッタ触媒、TNZ 触媒、メタ
ロセン触媒、フィリップス触媒等を用いて製造されたものが好ましく使用され
る。

またエンジニアリングプラスチックも、特に限定はなく、例えば、ポリアミ
ド樹脂としては、ポリマー鎖にアミド結合を有するものであって、加熱溶融で
20 きるものであればよい。例えば、ジアミンとジカルボン酸との縮合反応、アミ
ノカルボン酸の縮合反応、ラクタムの開環重合等のいずれの方法によって製造
されたものでもよく、代表例としてはナイロン66、ナイロン69、ナイロン
610、ナイロン612、ポリービスー(p-アミノシクロヘキシル)メタン
ドデカミド、ナイロン46、ナイロン6、ナイロン12、ナイロン66とナイ
25 ロン6の共重合体であるナイロン66/6や、ナイロン6/12の如き共重合
体等が例示される。

ポリエステル樹脂としては、ポリマー鎖にエステル結合を有するものであっ
て、加熱溶融できるものであればよく、例えばジカルボン酸とジヒドロキシ化
合物との重縮合等によって得られるポリエステルが例示され、ホモポリエステ

ル、コポリエステル of いずれであってもよい。

ポリカーボネート樹脂としては、ポリマー鎖にカーボネート結合を有するものであって、加熱溶融できるものであれば良く、例えば溶剤、酸受容体、分子量調整剤の存在下、芳香族ヒドロキシ化合物又はこれと少量のポリヒドロキシ化合物に、ホスゲン、ジフェニルカーボネートのようなカーボネート前駆体を反応させることにより得られるポリカーボネートが例示される。ポリカーボネート樹脂は、直鎖であっても分岐であってもよく、また、共重合体であってもよい。

本発明の亜リン酸エステル化合物 (I) を含有せしめて有機材料を安定化する場合、亜リン酸エステル化合物 (I) は、有機材料 100 重量部に対して好ましくは 0.001~5 重量部程度、より好ましくは 0.005~3 重量部程度、特に好ましくは 0.01~1 重量部程度配合される。

本発明の亜リン酸エステル化合物 (I) を有機材料に含有せしめるにあたっては、必要に応じてさらに、例えばフェノール系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、過酸化物スカベンジャー、ポリアミド安定剤、ヒドロキシルアミン、滑剤、可塑剤、難燃剤、造核剤、金属不活性化剤、帯電防止剤、顔料、充填剤、アンチブロッキング剤、界面活性剤、加工助剤、発泡剤、乳化剤、光沢剤、ステアリン酸カルシウム、ハイドロタルサイト等の中和剤、更には 9,10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスホフェナンスレン-10-オキシド等の着色改良剤や、米国特許 4,325,853 号、4,338,244 号、5,175,312 号、5,216,053 号、5,252,643 号、4,316,611 号明細書、DE-A-4,316,622 号、4,316,876 号明細書、EP-A-589,839、591,102 号明細書等に記載のペンゾフラン化合物、インドリン化合物等の補助安定剤などその他の添加剤を含有させることもできる。これらの添加剤はもちろん、亜リン酸エステル化合物 (I) と同時に配合することもできるし、また亜リン酸エステル化合物 (I) とは別の段階で配合することもできる。

上記フェノール系酸化防止剤としては、例えば次のようなものが例示される。

(1) アルキル化モノフェノールの例：

2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール、2,4,6-トリ-*t*-ブチルフェノール、

2,6-ジ-t-ブチルフェノール、2-t-ブチル-4,6-ジメチルフェノール、2,6-ジ-t-ブチル-4-エチルフェノール、2,6-ジ-t-ブチル-4-n-ブチルフェノール、2,6-ジ-t-ブチル-4-イソブチルフェノール、2,6-ジシクロペンチル-4-メチルフェノール、2-(α -メチルシクロヘキシル)-4,6-ジメチルフェノール、2,6-ジオクタデシル-4-メチルフェノール、2,4,6-トリシクロヘキシルフェノール、2,6-ジ-t-ブチル-4-メトキシメチルフェノール、2,6-ジ-ノニル-4-メチルフェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルウンデシル-1'-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルヘプタデシル-1'-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルトリデシル-1'-イル)フェノールおよびそれらの混合物など。

10 (2) アルキルチオメチルフェノールの例：

2,4-ジオクチルチオメチル-6-t-ブチルフェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-メチルフェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-エチルフェノール、2,6-ジドデシルチオメチル-4-ノニルフェノールおよびそれらの混合物など。

(3) ヒドロキノン及びアルキル化ヒドロキノンの例：

15 2,6-ジ-t-ブチル-4-メトキシフェノール、2,5-ジ-t-ブチルヒドロキノン、2,5-ジ-t-アミルヒドロキノン、2,6-ジフェニル-4-オクタデシルオキシフェノール、2,6-ジ-t-ブチルヒドロキノン、2,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル ステアレート、ビス(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) アジペートおよびそれらの混合物など。

20 (4) トコフェロールの例：

α -トコフェロール、 β -トコフェロール、 γ -トコフェロール、 δ -トコフェロールおよびそれらの混合物など。

(5) ヒドロキシル化チオジフェニルエーテルの例：

2,2'-チオビス(6-t-ブチルフェノール)、2,2'-チオビス(4-メチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-チオビス(4-オクチルフェノール)、4,4'-チオビス(3-メチル-6-t-ブチルフェノール)、4,4'-チオビス(2-メチル-6-t-ブチルフェノール)、4,4'-チオビス(3,6-ジ-t-アミルフェノール)、4,4'-(2,6-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)ジスルフィドなど。

(6) アルキリデンビスフェノールおよびその誘導体の例：

2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[4-メチル-6-(α -メチルシクロヘキシル)フェノール]、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-ノニルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4-イソブチル-6-t-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[6-(α -メチルベンジル)-4-ノニルフェノール]、2,2'-メチレンビス[6-(α , α -ジメチルベンジル)-4-ノニルフェノール]、4,4'-メチレンビス(6-t-ブチル-2-メチルフェノール)、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-t-ブチルフェノール)、4,4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-t-ブチルフェノール)、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1,1-ビス(5-t-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、2,6-ビス(3-t-ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシベンジル)-4-メチルフェノール、1,1,3-トリス(5-t-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、1,1-ビス(5-t-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)-3-n-ドデシルメルカプトブタン、エチレングリコール ビス[3,3-ビス-3'-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル]ブチレート、ビス(3-t-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ジシクロペンタジエン、ビス[2-(3'-t-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルベンジル)-6-t-ブチル-4-メチルフェニル]テレフタレート、1,1-ビス(3,5-ジメチル-2-ヒドロキシフェニル)ブタン、2,2-ビス(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(5-t-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)-4-n-ドデシルメルカプトブタン、1,1,5,5-テトラ(5-t-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ペンタン、2-t-ブチル-6-(3'-t-ブチル-5'-メチル-2'-ヒドロキシベンジル)-4-メチルフェニル アクリレート、2,4-ジ-t-ペンチル-6-[1-(2-ヒドロキシ-3,5-ジ-t-ペンチルフェニル)エチル]フェニル アクリレート、およびそれらの混合物など。

(7) O-、N-およびS-ベンジル誘導体の例：

3,5,3',5'-テトラ-t-ブチル-4,4'-ジヒドロキシジベンジルエーテル、オクタデシル-4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルベンジルメルカプトアセテート、トリス(3

,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル)アミン、ビス(4-t- プチル-3- ヒドロキシ-2,6- ジメチルベンジル)ジチオテレフタレート、ビス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル)スルフィド、イソオクチル-3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジルメルカプトアセテートおよびそれらの混合物等。

5 (8) ヒドロキシベンジル化マロネート誘導体の例：

ジオクタデシル-2,2- ビス(3,5- ジ-t- プチル-2- ヒドロキシベンジル) マロネート、ジオクタデシル-2-(3-t-プチル-4- ヒドロキシ-5- メチルベンジル) マロネート、ジドデシルメルカプトエチル-2,2- ビス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル) マロネート、ビス[4-(1,1,3,3-テトラメチルプチル) フェニル]
10]-2,2-ビス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル) マロネートおよびそれらの混合物など。

(9) 芳香族ヒドロキシベンジル誘導体の例：

1,3,5-トリメチル-2,4,6- トリス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル)ベンゼン、1,4-ビス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル)-2,3,5,6-テ
15 トラメチルベンゼン、2,4,6-トリス(3,5-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル)フェノール、及びそれらの混合物等。

(10) トリアジン誘導体の例：

2,4-ビス(n- オクチルチオ)-6-(4- ヒドロキシ-3,5- ジ-t- プチルアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-n-オクチルチオ-4,6- ビス(4- ヒドロキシ-3,5- ジ-t- プ
20 チルアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-n-オクチルチオ-4,6- ビス(4- ヒドロキシ-3,5- ジ-t- プチルフェノキシ)-1,3,5-トリアジン、2,4,6-トリス (3,5-ジ-t- プチル-4- フェノキシ)-1,3,5-トリアジン、トリス(4-t- プチル-3- ヒドロキシ-2,6- ジメチルベンジル)イソシアヌレート、トリス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、2,4,6-トリス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒ
25 ドロキシフェニルエチル)-1,3,5-トリアジン、2,4,6-トリス(3,5- ジ-t- プチル-4- ヒドロキシフェニルプロピル)-1,3,5-トリアジン、トリス(3,5- ジシクロヘキシル-4- ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、トリス[2-(3',5'-ジ-t- プチル-4'-ヒドロキシシンナモイルオキシ)エチル]イソシアヌレート、及びそれらの混合物等。

(11)ペンシルホスホネート誘導体の例：

ジメチル-3,5- ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシペンシルホスホネート、ジエチル
-3,5- ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシペンシルホスホネート、ジオクタデシル-3,5
- ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシペンシルホスホネート、ジオクタデシル-5-*t*- ブ
5 チル-4- ヒドロキシ-3- メチルペンシルホスホネート、3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒ
ドロキシペンシルホスホン酸モノエステルのカルシウム塩、及びそれらの混合
物等。

(12)アシルアミノフェノール誘導体の例：

4-ヒドロキシラウリル酸アニリド、4-ヒドロキシステアリン酸アニリド、オク
10 チル-N-(3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシフェニル)カルバネート、及びそれら
の混合物等。

(13)β-(3,5-ジ-*t*- ブチル-4- ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と以下の一価
または多価アルコールとのエステル例：

メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、エチレングリ
15 コール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサジオール、
1,9-ノナンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、チオエ
チレングリコール、スピログリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリ
スリトール、トリス（ヒドロキシエチル）イソシアヌレート、N,N'-ビス（ヒド
ロキシエチル）オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、
20 トリメチルヘキサジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-
ホスファー-2,6,7-トリオキサビシクロ[2,2,2]オクタン、及びそれらの混合物等。

(14)β-(5-*t*-ブチル-4- ヒドロキシ-3- メチルフェニル)プロピオン酸と以下の
一価または多価アルコールとのエステル例：

メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、エチレングリ
25 コール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサジオール、
1,9-ノナンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、チオエ
チレングリコール、スピログリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリ
スリトール、トリス（ヒドロキシエチル）イソシアヌレート、N,N'-ビス（ヒド
ロキシエチル）オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、

トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2,2,2] オクタン、及びそれらの混合物等。

(15) β -(3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と以下の一価または多価アルコールとのエステル例：

- 5 メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、チオエチレングリコール、スピログリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、
- 10 トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2,2,2]オクタン、及びそれらの混合物等。

(16) 3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル酢酸と以下の一価または多価アルコールとのエステル例：

- 15 メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、チオエチレングリコール、スピログリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、
- 20 トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2,2,2]オクタン、及びそれらの混合物等。

(17) β -(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸のアミドの例：

- N,N'-ビス[3-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオニル]ヒ
- 25 ドラジン、N,N'-ビス[3-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオニル]ヘキサメチレンジアミン、N,N'-ビス[3-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオニル]トリメチレンジアミン、及びそれらの混合物等。

イオウ系酸化防止剤としては、例えば次のようなものが例示される。

ジラウリル 3,3'-チオジプロピオネート、トリデシル 3,3'-チオジプロピオ

ネート、ジミリスチル 3,3'-チオジプロピオネート、ジステアリル 3,3'-チオジプロピオネート、ラウリル ステアリル 3,3'-チオジプロピオネート、ネオペンタンテトライルテトラキス (3-ラウリルチオプロピオネート)等。

リン系酸化防止剤としては、例えば次のようなものが例示される。

- 5 トリフェニルホスファイト、トリス (ノニルフェニル) ホスファイト、トリス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ホスファイト、トリラウリルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジステアリル ペンタエリスリトール ジホスファイト、ジイソデシル ペンタエリスリトール ジホスファイト、ビス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ペンタエリスリトール ジホスファイト、ビス(2,4-ジ-*t*-ブチル
- 10 -6-メチルフェニル)ペンタエリスリトール ジホスファイト、ビス(2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトール ジホスファイト、ビス(2,4,6-トリ-*t*-ブチルフェニル)ペンタエリスリトール ジホスファイト、トリスステアリルソルビトールトリホスファイト、テトラキス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)-4,4'-ジフェニレンジホスホナイト、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル)
- 15 2-エチルヘキシル ホスファイト、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル)フルオロ ホスファイト、ビス(2,4-ジ-*t*-ブチル-6-メチルフェニル)エチル ホスファイト、ビス(2,4-ジ-*t*-ブチル-6-メチルフェニル)メチルホスファイト、2-(2,4,6-トリ-*t*-ブチルフェニル)-5-エチル-5-ブチル-1,3,2-オキサホスホリナン、2,2',2''-ニトリロ [トリエチルトリス(3,3',5,5'-テトラ
- 20 -*t*-ブチル-1,1'-ビフェニル-2,2'-ジイル) ホスファイト、及びそれらの混合物等。

紫外線吸収剤としては、例えば次のようなものが例示される。

(1) サリシレート誘導体の例：

- 25 フェニル サリシレート、4-*t*-ブチルフェニル サリシレート、2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル 3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベンゾエート、4-*t*-オクチルフェニル サリシレート、ビス(4-*t*-ブチルペンゾイル)レゾルシノール、ベンゾイルレゾルシノール、ヘキサデシル 3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベンゾエート、オクタデシル 3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベンゾエート、2-メチル-4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル 3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベ

ンゾエート、及びそれらの混合物等。

(2) 2-ヒドロキシベンゾフェノン誘導体の例：

2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4-メトキシ
5 ベンゾフェノン、ビス(5-ベンゾイル-4-ヒドロキシ-2-メトキシフェニル)メタン、2,2',4,4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、及びそれらの混合物等。

(3) 2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾールの例：

2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-
ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(5'-*t*-ブチル-2'-ヒ
10 ドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-*t*-オクチルフェ
ニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル
)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-*s*-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-*t*-ブチル
フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-4'-オクチルオキシフェニル)
ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-*t*-アミル-2'-ヒドロキシフェニル)ベン
15 トリアゾール、2-[2'-ヒドロキシ-3',5'-ビス(α , α -ジメチルベンジル)フェ
ニル]-2H-ベンゾトリアゾール、2-[(3'-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)-
5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)フェニル]-5-クロロベンゾトリアゾ
ール、2-[3'-*t*-ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-
ヒドロキシフェニル]-5-クロロベンゾトリアゾール、2-[3'-*t*-ブチル-2'-ヒド
20 ロキシ-5'-(2'-メトキシカルボニルエチル)フェニル]-5-クロロベンゾトリアゾ
ール、2-[3'-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2'-メトキシカルボニルエチル)フェ
ニル]ベンゾトリアゾール、2-[3'-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシ
カルボニルエチル)フェニル]ベンゾトリアゾール、2-[3'-*t*-ブチル-2'-ヒド
キシ-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]フェニル]ベン
25 トリアゾール、2-[2'-ヒドロキシ-3-(3,4,5,6-テトラヒドロフタルイミドメチル)-5-
メチルフェニル]ベンゾトリアゾール、2-(3,5'-ジ-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシ
フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-ドデシル-2'-ヒドロキシ-5'-メ
チルフェニル)ベンゾトリアゾールおよび2-[3'-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-イ
ソオクチルオキシカルボニルエチル)フェニル]ベンゾトリアゾールの混合物、2,

2'-メチレンビス[6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノール、2,2'-メチレンビス[4-t-ブチル-6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール]、ポリ(3~11) (エチレングリコール) と 2-[3'-t-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル] ベンゾトリアゾールとの縮合物、ポリ(3~11) (エチレングリコール) とメチル 3-[3-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-5-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル]プロピオネートとの縮合物、2-エチルヘキシル 3-[3-t-ブチル-5-(5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-ヒドロキシフェニル]プロピオネート、オクチル 3-[3-t-ブチル-5-(5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-ヒドロキシフェニル]プロピオネート、メチル 3-[3-t-ブチル-5-(5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-ヒドロキシフェニル]プロピオネート、3-[3-t-ブチル-5-(5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-ヒドロキシフェニル]プロピオン酸、及びそれらの混合物等。

光安定剤としては、例えば次のようなものが例示される。

15 (1)ヒンダードアミン系光安定剤の例：

ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) スクシネート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(N-オクトキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(N-ベンジルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(N-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル) 2-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2-ブチルマロネート、ビス(1-アクロイル-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) 2,2-ビス(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2-ブチルマロネート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル) デカンジオエート、2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル メタクリレート、4-[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ]-1-[2-(3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ)エチル]-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、2-メチル-2-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)アミノ-N-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)プロピ

- オンアミド、テトラキス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) 1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、テトラキス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル) 1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸と1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジノールおよび1-トリデカノールとの混合
- 5 エステル化物、
- 1,2,3,4-ブタンテトラボン酸と2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジノールおよび1-トリデカノールとの混合エステル化物、1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸と1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジノールおよび3,9-ビス(2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5・5]ウンデカンとの混合
- 10 エステル化物、1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸と2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジノールおよび3,9-ビス(2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5・5]ウンデカンとの混合エステル化物、ジメチルサクシネートと1-(2-ヒドロキシエチル)-4-ヒドロキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジンとの重縮合物、ポリ[(6-モルホリノ-1,3,5-トリアジン-2,4-ジイル)((2,2,6,6-
- 15 テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ)ヘキサメチレン((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ)]、ポリ[(6-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)イミノ-1,3,5-トリアジン-2,4-ジイル)((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ)ヘキサメチレン((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ)]、N,N'-ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)ヘキサメチレンジアミンと1,2-ジブプロモエタンとの重縮
- 20 合物、N,N',4,7-テトラキス[4,6-ビス(N-ブチル-N-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)アミノ)-1,3,5-トリアジン-2-イル]-4,7-ジアザデカン-1,10-ジアミン、N,N',4-トリス[4,6-ビス(N-ブチル-N-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)アミノ)-1,3,5-トリアジン-2-イル]-4,7-ジアザデカン-1,10-ジアミン、N,N',4,7-テトラキス[4,6-ビス(N-ブチル-N-(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)アミノ)-1,3,5-トリアジン-2-イル]-4,7-ジアザデカン-1,10-ジアミン、N,N',4-
- 25 トリス[4,6-ビス(N-ブチル-N-(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)アミノ)-1,3,5-トリアジン-2-イル]-4,7-ジアザデカン-1,10-ジアミン、及びそれらの混合物等。

(2) アクリレート系光安定剤の例：

エチル α -シアノ- β , β -ジフェニルアクリレート、イソオクチル α -シアノ- β , β -ジフェニルアクリレート、メチル α -カルボメトキシシンナメート、メチル α -シアノ- β -メチル-p-メトキシシンナメート、ブチル α -シアノ- β -メチル-p-メトキシシンナメート、メチル α -カルボメトキシ-p-メトキシシンナメートおよび N-(β -カルボメトキシ- β -シアノビニル)-2-メチルインドリン、及びそれらの混合物等。

(3) ニッケル系光安定剤の例：

2,2'-チオビス-[4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェノール]のニッケル錯体、ニッケルジブチルジチオカルバメート、モノアルキルエステルのニッケル塩、ケトキシムのニッケル錯体、及びそれらの混合物等。

(4) オキサミド系光安定剤の例：

4,4'-ジオクチルオキシオキサニリド、2,2'-ジエトキシオキサニリド、2,2'-ジオクチルオキシ-5,5'-ジ-t-ブチルアニリド、2,2'-ジドデシルオキシ-5,5'-ジ-t-ブチルアニリド、2-エトキシ-2'-エチルオキサニリド、N,N'-ビス(3-ジメチルアミノプロピル)オキサミド、2-エトキシ-5-t-ブチル-2'-エトキシアニリド、2-エトキシ-5,4'-ジ-t-ブチル-2'-エチルオキサニリド、及びそれらの混合物等。

(5) 2-(2-ヒドロキシフェニル)-1,3,5-トリアジン系光安定剤の例：

2,4,6-トリス(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-[2,4-ジヒドロキシフェニル-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2,4-ビス(2-ヒドロキシ-4-プロピルオキシフェニル)-6-(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-4,6-ビス(4-メチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-ドデシルオキシフェニル)-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-3-ブチルオキシプロポキシ)フェニル]-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-3-オクチルオキシプロポキシ)フェニル]-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、及びそれらの混合物等。

また金属不活性化剤としては、例えば次のようなものが例示される。

N,N'-ジフェニルオキサミド、N-サリチラル-N'-サリチロイルヒドラジン、N,N'-
ビス（サリチロイル）ヒドラジン、N,N'-ビス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ
フェニルプロピオニル)ヒドラジン、3-サリチロイルアミノ-1,2,4-トリアゾール
5、ビス（ベンジリデン）オキサリルジヒドラジド、オキサニリド、イソフタロ
イルジヒドラジド、セバコイルビスフェニルヒドラジド、N,N'-ビス（サリチロ
イル）オキサリルジヒドラジド、N,N'-ビス（サリチロイル）チオプロピオニル
ジヒドラジド、及びそれらの混合物等。

過酸化物スカベンジャーとしては、例えばβ-チオジプロピオン酸のエステ
10 ル、メルカプトベンゾイミダゾール、2-メルカプトベンゾイミダゾールの亜鉛塩、
ジブチルジチオカルバミン酸の亜鉛塩、ジオクタデシルジスルフィド、ペンタ
エリスリトール テトラキス（β-ドデシルメルカプト）プロピオネートおよ
びそれらの混合物等が例示される。

ポリアミド安定剤としては、例えばヨウ化物またはリン化合物の銅または2
15 価のマンガン塩およびそれらの混合物等が例示される。

ヒドロキシアミンとしては、例えばN,N-ジベンジルヒドロキシアミン、N,N-
ジエチルヒドロキシアミン、N,N-ジオクチルヒドロキシアミン、N,N-ジラウリ
ルヒドロキシアミン、N,N-ジテトラデシルヒドロキシアミン、N,N-ジヘキサデ
シルヒドロキシアミン、N,N-ジオクタデシルヒドロキシアミン、N-ヘキサデシ
20 ル-N-オクタデシルヒドロキシアミン、N-ヘプタデシル-N'-オクタデシルヒドロ
キシアミン、及びそれらの混合物等が例示される。

中和剤としては、例えばステアリン酸カルシウム、ステアリン酸亜鉛、ステ
アリン酸マグネシウム、ハイドロタルサイト（塩基性マグネシウム・アルミニ
ウム・ヒドロキシ・カーボネート・ハイドレード）、メラミン、アミン、ポリア
25 ミド、ポリウレタン、及びそれらの混合物等が例示される。

滑剤としては、例えばパラフィン、ワックス等の脂肪族炭化水素、炭素数8
～22 の高級脂肪族酸、炭素数8～22 の高級脂肪族酸金属（Al、Ca、Mg、
Zn）塩、炭素数8～22 の脂肪族アルコール、ポリグリコール、炭素数4～22
の高級脂肪酸と炭素数4～18 の脂肪族1価アルコールとのエステル、炭素数8

～22 の高級脂肪族アマイド、シリコーン油、ロジン誘導体などが例示される。

造核剤としては、例えば、次のようなものが例示される。

- ナトリウム 2,2'-メチレンビス(4,6- ジ-*t*- ブチルフェニル)ホスフェート、
 [リン酸-2,2'-メチレンビス(4,6- ジ-*t*- ブチルフェニル)] ジヒドロオキシ
 5 アルミニウム、ビス [リン酸-2,2'-メチレンビス(4,6- ジ-*t*- ブチルフェニル)
] ヒドロオキシアルミニウム、トリス [リン酸-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-
 ブチルフェニル)] アルミニウム、ナトリウム ビス(4-*t*-ブチルフェニル)ホ
 スフェート、安息香酸ナトリウム等の安息香酸金属塩、*p*-*t*-ブチル安息香酸ア
 ルミニウム、1,3:2,4-ビス(O-ベンジリデン)ソルビトール、1,3:2,4-ビス(O-メ
 10 チルベンジリデン)ソルビトール、1,3:2,4-ビス (O-エチルベンジリデン) ソル
 ビトール、1,3-O-3,4-ジメチルベンジリデン-2,4-O-ベンジリデンソルビトール
 、1,3-O-ベンジリデン-2,4-O-3,4-ジメチルベンジリデンソルビトール、1,3:2,4
 -ビス(O-3,4-ジメチルベンジリデン)ソルビトール、1,3-O-*p*-クロロベンジリデ
 ン-2,4-O-3,4-ジメチルベンジリデンソルビトール、1,3-O-3,4-ジメチルベンジ
 15 リデン-2,4-O-*p*-クロロベンジリデンソルビトール、1,3:2,4-ビス(O-*p*-クロロベ
 ンジリデン)ソルビトール、及びそれらの混合物等。

充填剤としては、例えば炭酸カルシウム、珪酸塩、ガラス繊維、アスベスト、
 タルク、カオリン、マイカ、硫酸バリウム、カーボンブラック、カーボンファ
 イバー、ゼオライト、及びそれらの混合物等が例示される。

- 20 これらの添加剤のうち好ましく用いられるものは、フェノール系酸化防止剤、
 リン系酸化防止剤、紫外線吸収剤、ヒンダードアミン系光安定剤、過酸化物ス
 カベンジャーおよび中和剤である。

特に好ましいフェノール系酸化防止剤としては以下の化合物が例示され、こ
 れらの化合物は2種以上混合して使用し得る。

- 25 2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール、2,4,6-トリ-*t*-ブチルフェノール、2,4
 -ジオクチルチオメチル-6-メチルフェノール、2,2'-チオビス(6-*t*-ブチルフェノ
 ール)、4,4'-チオビス(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス
 (4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチル
 フェノール)、2,2'-メチレンビス[4-メチル-6-(α -メチルシクロヘキシル) フ

- エノール)], 2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェノール)、4,4'-メチレンビス(6-*t*-ブチル-2-メチルフェノール)、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-*t*-ブチルフェノール)、4,4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1,1-ビス(5-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、1,1,3-トリス(5-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、エチレングリコールビス[3,3-ビス-3'-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)ブチレート]、2-*t*-ブチル-6-(3'-*t*-ブチル-5'-メチル-2'-ヒドロキシベンジル)-4-メチルフェニル
- 10 アクリレート、2,4-ジ-*t*-ペンチル-6-[1-(2-ヒドロキシ-3,5-ジ-*t*-ペンチルフェニル)エチル]フェニル アクリレート、
- 2,4,6-トリス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-フェノキシ)-1,3,5-トリアジン、トリス(4-*t*-ブチル-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルペンジル)イソシアヌレート、ビス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、トリス[2-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシシンナモイルオキシ)エチル]イソシアヌレート、ジエチル
- 15 -3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、ジ-*n*-オクタデシル-3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホン酸モノエステルのカルシウム塩、*n*-オクタデシル 3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、ネオペンタンテトライル
- 20 テトラキス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシシンナメート)、チオジエチレンビス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシシンナメート)、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、3,6-ジオキサオクタメチレンビス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシシンナメート)、ヘキサメチレンビス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシシンナメート)、トリエチレングリコールビス(5-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルシンナメート)、3,9-ビス[2-(3-(3-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ)-1,1-ジメチルエチル]-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5・5]ウンデカン、N,N'-ビス[3-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオニル]ヒドラジン、N,N'-ビス[3-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオニル]ヘキサメチレンジアミン等。
- 25

特に好ましいリン系酸化防止剤としては以下のものが例示され、これらは2種以上の混合物として使用し得る。

トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、トリス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ホスファイト、ジステアリル ペンタエリスリトール ジホスファイト、ビス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ペンタエリスリトール ジホスファイト、ビス(2,4-ジ-*t*-ブチル-6-メチルフェニル)ペンタエリスリトール ジホスファイト、ビス(2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトール ジホスファイト、テトラキス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)-4,4'-ジフェニレンジホスホナイト、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) 2-エチルヘキシル ホスファイト、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フルオロ ホスファイト、ビス(2,4-ジ-*t*-ブチル-6-メチルフェニル) エチルホスファイト、2-(2,4,6-トリ-*t*-ブチルフェニル)-5-エチル-5-ブチル-1,3,2-オキサホスホリナン、2,2',2''-ニトリロ [トリエチル-トリス(3,3',5,5'-テトラ-*t*-ブチル-1,1'-ビフェニル-2,2'-ジイル) ホスファイト等。

15 特に好ましい紫外線吸収剤としては以下のものが例示され、これらは2種以上混合して使用し得る。

フェニル サリシレート、4-*t*-ブチルフェニル サリシレート、2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル 3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベンゾエート、4-*t*-オクチルフェニル サリシレート、2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、ビス(5-ベンゾイル-4-ヒドロキシ-2-メトキシフェニル) メタン、2,2',4,4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、2-(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(5'-*t*-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-*t*-オクチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(3-*t*-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-*s*-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-*t*-ブチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-4'-オクチルオキシフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-*t*-アミル-2'-ヒドロキシフェニル) ベンゾトリアゾール

ル、2-[2'-ヒドロキシ-3',5'-ビス (α , α -ジメチルベンジル) フェニル]-2H-ベンゾトリアゾールなど。

特に好ましい光安定剤としては以下のものが例示され、これらは2種以上混合して使用し得る。

- 5 ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(N-オクトキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(N-ベンジルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(N-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル) 2-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2-ブチルマロネート、
- 10 ビス(1-アクロイル-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) 2,2-ビス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2-ブチルマロネート、ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) スクシネート、2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル メタクリレート、4-[3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオニルオキシ]-1-[2-(3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオニルオキシ) エチル]-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、
- 15 2-メチル-2-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) アミノ-N-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) プロピオンアミド、テトラキス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) 1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、
- 20 テトラキス(1,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル) 1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸と1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジノールおよび1-トリデカノールとの混合エステル化物、1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸と2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジノールおよび1-トリデカノールとの混合エステル化物、1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸と1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジノールおよび3,9-ビス(2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5・5]ウンデカンとの混合エステル化物、
- 25 1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸と2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジノールおよび3,9-ビス(2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5・5]ウンデカンとの混合エステル化物、ジメチル サクシネートと1-(2-

ヒドロキシエチル)-4-ヒドロキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジンとの重縮合物、ポリ[(6-モルホリノ-1,3,5-トリアジン-2,4-ジイル) ((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) イミノ) ヘキサメチレン((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) イミノ)], ポリ[(6-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-1,3,5-トリアジン-2,4-ジイル) ((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル) イミノ) ヘキサメチレン((2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ))など。

亜リン酸エステル (I)、あるいは必要に応じて使用されるその他の添加剤を有機材料に配合するにあたっては、均質な混合物を得るための公知のあらゆる方法および装置を用いることができる。例えば有機材料が固体ポリマーである場合は、亜リン酸エステル化合物 (I) あるいはさらにその他の添加剤を、その固体ポリマーに直接ドライブレンドすることもできるし、また亜リン酸エステル化合物あるいはさらにその他の添加剤をマスターバッチの形で、固体ポリマーに配合することもできる。有機材料が液状ポリマーである場合はその他、重合途中あるいは重合直後のポリマー溶液に、亜リン酸エステル化合物 (I) あるいはさらにその他の添加剤の溶液または分散液の形で配合することもできる。一方、有機材料が油などの液体である場合は、亜リン酸エステル化合物 (I) あるいはさらにその他の添加剤を直接添加して溶解させることもできるし、また亜リン酸エステル化合物 (I) あるいはさらにその他の添加剤を液状媒体に溶解または懸濁させた状態で添加することもできる。

20

実施例

以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によって限定されるものではない。

25 実施例 1

ビス[4-[[2,4,8,10-テトラキス(1,1-ジメチルエチル)ジベンゾ[d,f][1,3,2]ジオキサホスフェピン-6-イル]オキシ]フェニル]スルフィド (化合物 1) の製造

温度計、攪拌装置及び冷却管を備えたフラスコに、窒素気流下、10.0g の 3,3', 5,5'-テトラ-*t*-ブチルピフェニル-2,2'-ジオール、110ml のトルエンを仕込んだ

後、攪拌条件下に 3.5g の三塩化リンを加え、次いで 6.4g のトリエチルアミンを加えて、80℃で2時間保温した。

室温まで冷却後、2.7g のビス(4-ヒドロキシジフェニル)スルフィドを加え、次いで 3.8g のトリエチルアミンを加え、80℃で2時間保温した。

- 5 次に室温まで冷却した後、生成したトリエチルアミンの塩酸塩を濾過、洗浄した。濾洗液を濃縮した後、残渣をシリカゲルクロマトグラフィーで精製して、10.1g の白色結晶を得た。

質量分析値 (FD-MS) : $m/z = 1094$

10 実施例 2

ビス[4-[[2,4,8,10-テトラキス(1,1-ジメチルエチル)ジベンゾ[d,f][1,3,2]ジ
オキサホスフェピン-6-イル]オキシ]フェニル]エーテル(化合物 2)の製造

ビス(4-ヒドロキシジフェニル)スルフィドの代わりに、2.5g の 4,4'-ジヒドロ
キシジフェニルエーテルを用いる以外は、実施例 1 に準拠して操作し、7.3g の

- 15 白色結晶を得た。

質量分析値 (FD-MS) : $m/z = 1079$

実施例 3

ビス[4-[[2,4,8,10-テトラキス(1,1-ジメチルエチル)ジベンゾ[d,f][1,3,2]ジ
20 オキサホスフェピン-6-イル]オキシ]フェニル]スルホン(化合物 3)の製造

ビス(4-ヒドロキシジフェニル)スルフィドの代わりに 4.7g のビス(4-ヒドロキ
シフェニル)スルホンを用いる以外は実施例 1 に準拠して操作し、7.0g の白色結
晶を得た。

質量分析値 (FD-MS) : $m/z = 1126$

25

実施例 4

ポリカーボネートの着色性試験

[配 合]

ポリカーボネート

100 重量部

供試安定剤

0.05 重量部

化合物 1 (実施例 1 で製造)

化合物 2 (実施例 2 で製造)

化合物 3 (実施例 3 で製造)

- 5 P-1 : 3-(3,4-ジメチルフェニル)-5,7-ジ-*t*-ブチル-3H-ベンゾフラン-2-
 ・オンと、*n*-オクタデシル 3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピ
 オネートと、トリス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ホスファイトとの混合物 (但し
 、重量比は 15 : 42.5 : 42.5)

- 10 30mm φ の一軸押出機を用い、上記配合物を 340℃ で熔融混練してペレット化
 した。得られたペレットの Y I (イエローネス・インデックス) 値を色差計に
 より測定して、結果を下表 1 に示した。Y I 値が低いほど、着色防止性能に優
 れることを意味する。

表 1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
供試化合物	化合物 1	化合物 2	化合物 3	—	P-1
着色性 Y1	0.2	-0.1	0.6	1.8	1.0

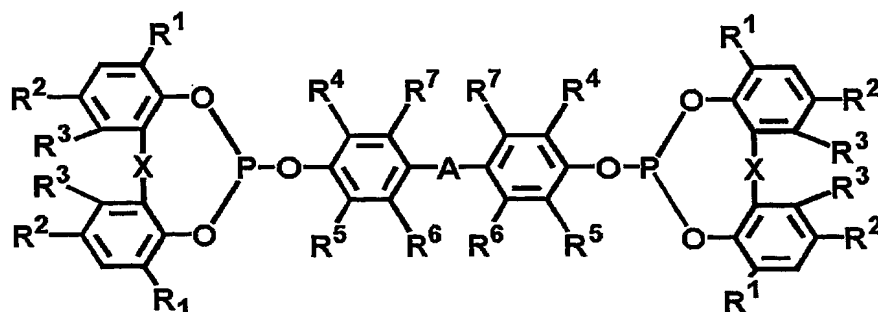
15

産業上の利用可能性

本発明の亜リン酸エステル (I) は、ポリオレフィンやエンジニアリングプ
 ラスチック等の熱可塑性樹脂を含む各種有機材料の安定剤として優れた性能を
 有し、この化合物を含有せしめた有機材料は製造時、加工時及び使用時の着色
 20 が防止される。

請 求 の 範 囲

1. 式 (I):



- 5 (式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に水素原子、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、炭素数 6～12 のアルキルシクロアルキル基、炭素数 7～12 のアラルキル基、又はフェニル基を表し、

R^3 は水素原子又は炭素数 1～8 のアルキル基を表す。

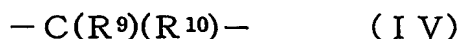
- 10 R^4 、 R^5 、 R^6 及び R^7 は、それぞれ独立に水素原子、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、炭素数 6～12 のアルキルシクロアルキル基、炭素数 7～12 のアラルキル基、フェニル基、炭素数 1～8 のアルコキシ基又はハロゲン原子を表す。

- 但し、4 個の R^1 は互いに同一または異なり、4 個の R^2 は互いに同一または異なり、4 個の R^3 は同一または異なり、2 個の R^4 は互いに同一または異なり、
15 2 個の R^5 は互いに同一または異なり、2 個の R^6 は互いに同一または異なり、さらに 2 個の R^7 は互いに同一または異なる。

X は単結合、硫黄原子又は $-CHR^8-$ 基を表し、

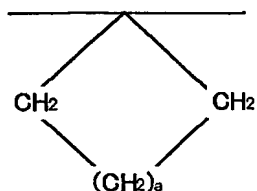
R^8 は水素原子、炭素数 1～8 のアルキル基又は炭素数 5～8 のシクロアルキル基を表し、

- 20 A は単結合、酸素原子、硫黄原子、スルホニル基、スルフィニル基、カルボニル基、フェニレン基、下式 (IV):



(式中、 R^9 及び R^{10} は、それぞれ独立に水素原子、フェニル基、炭素数 1～8 のアルキル基、炭素数 5～8 のシクロアルキル基、又は炭素数 5～8 のアルキ

ルシクロアルキル基を表す。)で示される基、二価の二環式飽和炭化水素残基、又は下式 (V) :



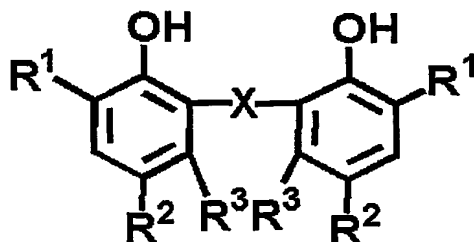
(V)

(式中、aは2～5の整数を表し、アルキレン基は炭素数1～8のアルキル基
5 で置換されていてもよく、または、1～2個のベンゼン環と縮環していてもよい。)で示される二価の炭化水素環基を表す。))で示される亜リン酸エステル化合物。

2. R¹が3級アルキル基もしくは置換もしくは無置換のシクロヘキシル基で
あり、R²が炭素数1～5のアルキル基であり、R³が水素原子又は炭素数1～5
10 のアルキル基であり、R⁴、R⁵、R⁶及びR⁷が、それぞれ水素原子、又は炭素数
1～5のアルキル基を表し、Xが単結合、メチレン基、又は炭素数1～4のアル
キル基で置換された置換メチレン基を表し、

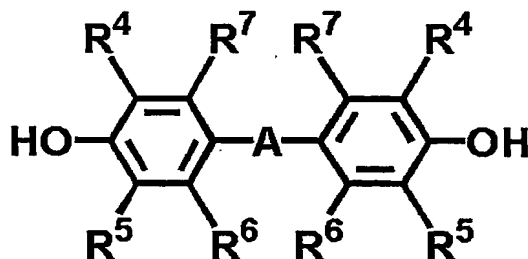
Aが、単結合、酸素原子、硫黄原子、スルホニル基、スルフィニル基、カル
ボニル基、フェニレン基又はイソプロピリデン基を表す請求項1に記載の亜リ
15 ン酸エステル化合物。

3. 式 (I I) :



(式中、R¹、R²、R³及びXは請求項1と同じ意味を表す。)

で示されるジフェノール化合物と、三ハロゲン化リンと、下記式(III)：



(式中、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷及びAは、請求項1における定義と同じ意味を表す。)

- 5 5. 請求項1に記載の三ハロゲン化リンとを反応させることを特徴とする請求項1に記載の亜リン酸エステル化合物の製造方法。
4. 式(2)で表されるジフェノール化合物と三ハロゲン化リンとを反応させ、次いで生成する化合物を式(III)で示されるビスフェノール化合物と反応させることを特徴とする請求項3に記載の製造方法。
- 10 5. 請求項1に記載の亜リン酸エステル化合物を有効成分として含有することを特徴とする有機材料用安定剤。
6. アミン化合物および酸と結合する金属塩からなる群から選ばれる少なくともひとつの成分をさらに含有してなる請求項5に記載の有機材料用安定剤。
7. 酸と結合する金属化合物が、ハイドロタルサイトである請求項6に記載
- 15 の安定剤。
8. アミン化合物が、ジアルカノールアミン、モノアルカノールアミン、芳香族アミン、アルキルアミン、ポリアルキレンポリアミン、又はヒンダードアミン系光安定剤である請求項6に記載の安定剤。
9. 有機材料に請求項1に記載の亜リン酸エステル化合物を含有せしめるこ
- 20 とを特徴とする有機材料の安定化方法。
10. 有機材料が、熱可塑性樹脂である請求項9に記載の安定化方法。
11. 熱可塑性樹脂が、ポリオレフィン又はエンジニアリングプラスチックである請求項10に記載の安定化方法。
12. 有機材料に請求項1に記載の亜リン酸エステル化合物を含有させてな

る安定化された有機材料組成物。

1 3. 有機材料が、熱可塑性樹脂である請求項 1 2 に記載の組成物。

1 4. 熱可塑性樹脂が、ポリオレフィン又はエンジニアリングプラスチックである請求項 1 3 に記載の組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/10680

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C07F9/6568, 9/6574, 9/6578, C08L23/00, 101/00, C08K5/524,
C09K15/32

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C07F9/6568, 9/6574, 9/6578, C08L23/00, 101/00, C08K5/524,
C09K15/32

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 775723 A1 (ASAHI DENKA KOGYO KABUSHIKI KAISHA), 28 May, 1997 (28.05.97), & JP 8-34877 A	1-14
X	JP 5-331180 A (Yoshitomi Seiyaku Kabushiki Kaisha), 14 December, 1993 (14.12.93), (Family: none)	1-14
X	JP 1-121368 A (Adeka Argus Chemical Co., Ltd), 15 May, 1989 (15.05.89), (Family: none)	1-14

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
25 September, 2003 (25.09.03)

Date of mailing of the international search report
21 October, 2003 (21.10.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷ C07F9/6568, 9/6574, 9/6578, C08L23/00, 101/00, C08K5/524, C09K15/32

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷ C07F9/6568, 9/6574, 9/6578, C08L23/00, 101/00, C08K5/524, C09K15/32

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP 775723 A1 (ASAHI DENKA KOGYO KABUSHIKI KAISYA) 1997. 05. 28 & JP 8-34877 A	1-14
X	JP 5-331180 A (吉富製薬株式会社) 1993. 12. 14 (ファミリーなし)	1-14
X	JP 1-121368 A (アデカ・アーガス化学株式会社) 1989. 05. 15 (ファミリーなし)	1-14

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

25. 09. 03

国際調査報告の発送日

21.10.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

本堂裕司

4H

9049

電話番号 03-3581-1101 内線 3443